



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH GmbH

Institut für Chemische Technologie
der Nuklearen Entsorgung
Zentralabteilung für Allgemeine Technologie
Association EURATOM-KFA

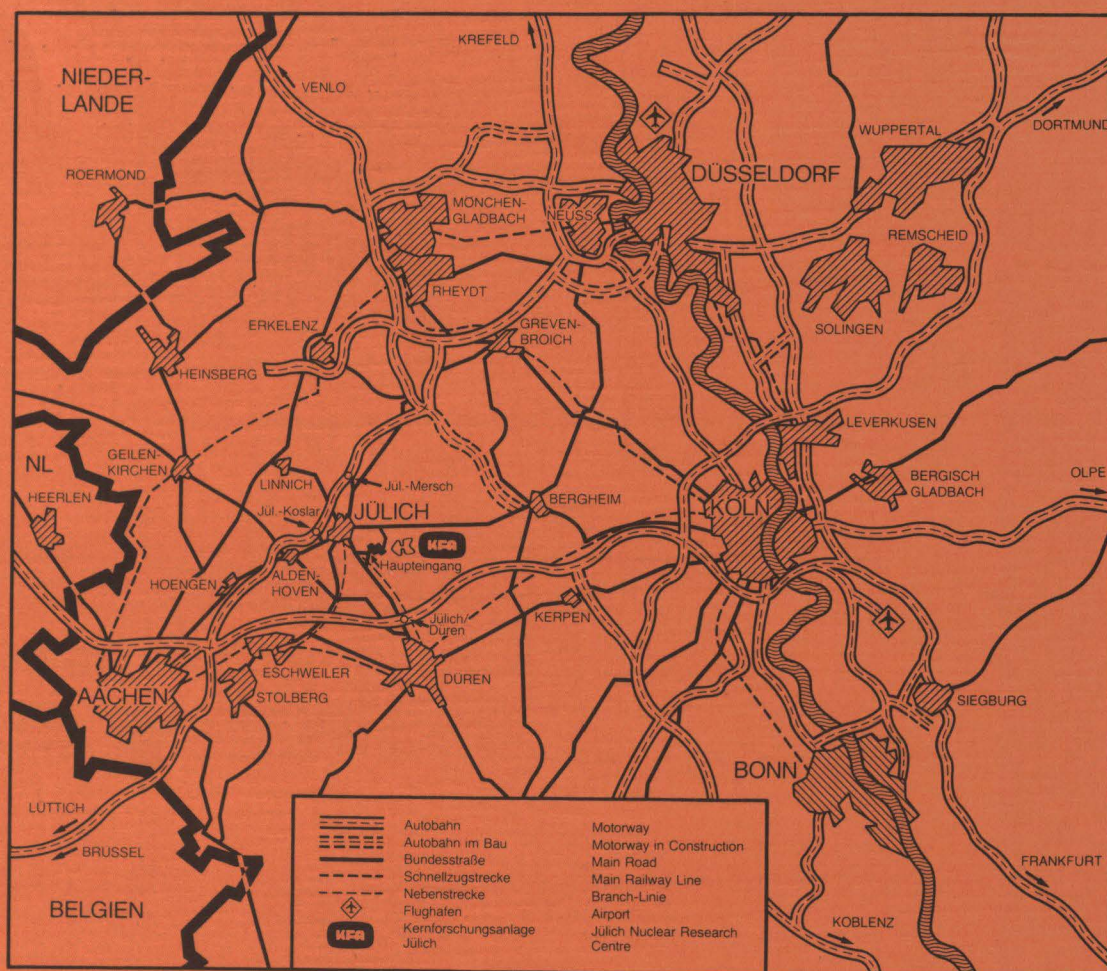
Destillationsanlage zur Anreicherung von Tritium in Metallischem Lithium

von

E. Barnert, D. Butzek, H.J. Cordewiner
und E. Heinrichs

Jül-Spez-259
Juni 1984
ISSN 0343-7639





Als Manuskript gedruckt

Spezielle Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 259

Institut für Chemische Technologie der Nuklearen Entsorgung
Zentralabteilung für Allgemeine Technologie Jül-Spez-259
Association EURATOM-KFA

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH
Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)
Telefon: 02461/610 · Telex: 833556-0 kf d

Destillationsanlage zur Anreicherung von Tritium in Metallischem Lithium

von

E. Barnert, D. Butzek, H.J. Cordewiner
und E. Heinrichs

DESTILLATIONSANLAGE ZUR ANREICHERUNG VON
TRITIUM IN METALLISCHEM LITHIUM

von

E. Barnert

D. Butzek

H. J. Cordewiner

E. Heinrichs

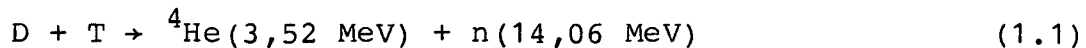
KURZFASSUNG

Zur Schließung des Äußeren Brennstoffkreislaufes bei Fusionsreaktoren muß das aus Lithium erbrütete Tritium vom Lithium abgetrennt werden. Eine Möglichkeit des Abtrennens ist die Hochtemperaturdestillation mit anschließendem Permeations-schritt.

In dem vorliegenden Bericht wird der Aufbau einer Hochtemperaturdestillationsanlage beschrieben, wobei zunächst anstelle von Tritium Deuterium zum Einsatz kommt.

1. EINLEITUNG

Bei der Verschmelzung (Fusion) leichter Atomkerne werden hohe Beträge von nuklearer Bindungsenergie freigesetzt. Für die kontrollierte Fusion, die der langfristigen irdischen Energieversorgung dienen kann, gibt es mehrere Möglichkeiten /1/, von denen die Deuterium-Tritium-Reaktion



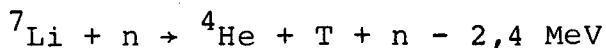
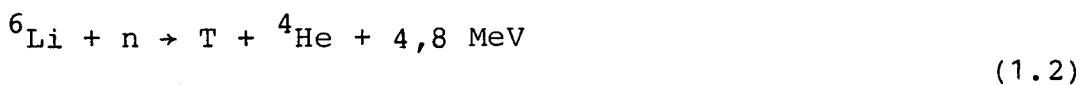
die größte Aussicht auf Verwirklichung hat, da mit ihr die höchsten Leistungsdichten bei geringsten notwendigen Brenntemperaturen erzielt werden können /1,2/.

Während die für die Reaktion (1.1) erforderliche Brennstoffkomponente Deuterium auf der Erde in genügenden Mengen vorhanden ist

- z. B. beinhalten die Weltmeere ca. $4,6 \cdot 10^{19} \text{ g}$ Deuterium /3/ -
muß das radioaktive Tritium

- natürliches globales Gleichgewichtsinventar ca. $7,3 \cdot 10^3 \text{ g}$
bzw. ca. $2,7 \cdot 10^7 \text{ cm}^3$ /4/ -

mit Hilfe der Fusionsneutronen durch die Reaktionen



aus dem Lithium, das im Blanket des Fusionsreaktors als Metall, Verbindung oder Legierung vorliegen kann, erbrütet werden /2/.

Zur Schließung des "Äußeren Brennstoffkreislaufs" des Fusionsreaktors, d. h. zur Vermeidung eines zu hohen Tritiuminventars im Blanket sowie zur Gewinnung der Brennstoffkomponente Tritium ist ein kontinuierlicher Abzug des Tritiums erforderlich. Bei Verwendung eines flüssigen Brutmaterials, z. B. metallischem Lithium, erfolgt dies durch langsames Umwälzen dieses Materials.

Außerhalb des Reaktors wird dann das Tritium vom Lithium abgetrennt /5/.

Eine Möglichkeit der Abtrennung des Tritiums vom metallischen Lithium besteht in der Anreicherung des Tritiums im Lithium von etwa 10 ppm auf etwa 700 ppm mit einem anschließenden Permeationsschritt /6/. Die Anreicherung des Tritiums im Lithium erfolgt dabei durch eine Hochtemperaturdestillation, bei der durch Stoffaustausch zwischen der dampfförmigen, aufsteigenden und der flüssigen, rückströmenden Phase eine Erhöhung der Konzentration von Lithiumtritid im Lithium erreicht wird.

Im Rahmen des Projektes Kernfusion der Kernforschungsanlage Jülich wurde der Bau einer Anlage geplant, mit der die Hochtemperaturdestillation erprobt werden soll. Anstelle des Tritiums sollte aber vorerst Deuterium in metallischem Lithium angereichert werden.

2. ANLAGENKONZEPT

2.1 Allgemeines

Eine der ersten Entscheidungen, die während der Projektierung der Anlage zu treffen war, bestand darin, ob der Arbeitsprozeß kontinuierlich oder diskontinuierlich ablaufen sollte.

Während die kontinuierlich arbeitende Anlage i. a. den "eleganteren" Prozeßablauf garantiert, hat die diskontinuierlich arbeitende Anlage oft hinsichtlich ihres einfacheren Aufbaus und vor allem im Hinblick auf die zu erwartenden Baukosten Vorteile.

Als Entscheidungshilfe zur Auswahl des Arbeitsprozesses werden im folgenden Kapitel die Fließbilder beider Prozeßabläufe einander gegenübergestellt.

2.2 Fließbilder für die kontinuierlich bzw. diskontinuierlich arbeitende Anlage

In Abb. 2.1 bzw. Abb. 2.2 sind die Fließbilder für die kontinuierlich bzw. diskontinuierlich arbeitende Anlage gezeigt.

Hauptkomponenten der Anlage sind die Destillationskolonne [1] mit der Sumpfheizung [2], Stützheizung [2a] und Kondensator [3]. Die Kolonne selbst ist von einem zweiten Gefäß umgeben, das die während des Betriebes auftretende atmosphärische Druckkraft aufnimmt (siehe hierzu Kapitel 5). Die Komponenten [1] bis [3] unterscheiden sich hinsichtlich ihrer Auslegung für kontinuierlichen oder diskontinuierlichen Betrieb der Anlage im wesentlichen nicht.

Für die kontinuierliche Zuführung des zu destillierenden Produktes sind lt. Fließbild zwei hintereinandergeschaltete, beheizbare Behälter, in denen das metallische Lithium-Deuterium-Gemisch verflüssigt, bzw. auf Destillationstemperatur erhitzt wird, vorgesehen [4]. Weiterhin ist für die kontinuierliche Zuführung des Feedproduktes eine automatische Durchflußregelung erforderlich.

Die Zuführung des Feedproduktes bei der diskontinuierlich arbeitenden Kolonne erfolgt dagegen über den Sumpfabzugbehälter. Der Behälter wird dabei mit einer Charge des flüssigen Feedproduktes gefüllt, das dann mittels Argon in die Kolonne gedrückt wird.

Die kontinuierlich arbeitende Kolonne benötigt neben der stetigen Produktzufuhr einen kontinuierlichen Destillat- und Sumpfproduktabzug. Der Destillatabzug [5] erfolgt über eine automatische Durchflußregelung in einen beheizten, abkoppelbaren Behälter. Das Sumpfprodukt wird kontinuierlich über einen abflanschbaren Aufnahmebehälter abgezogen [6].

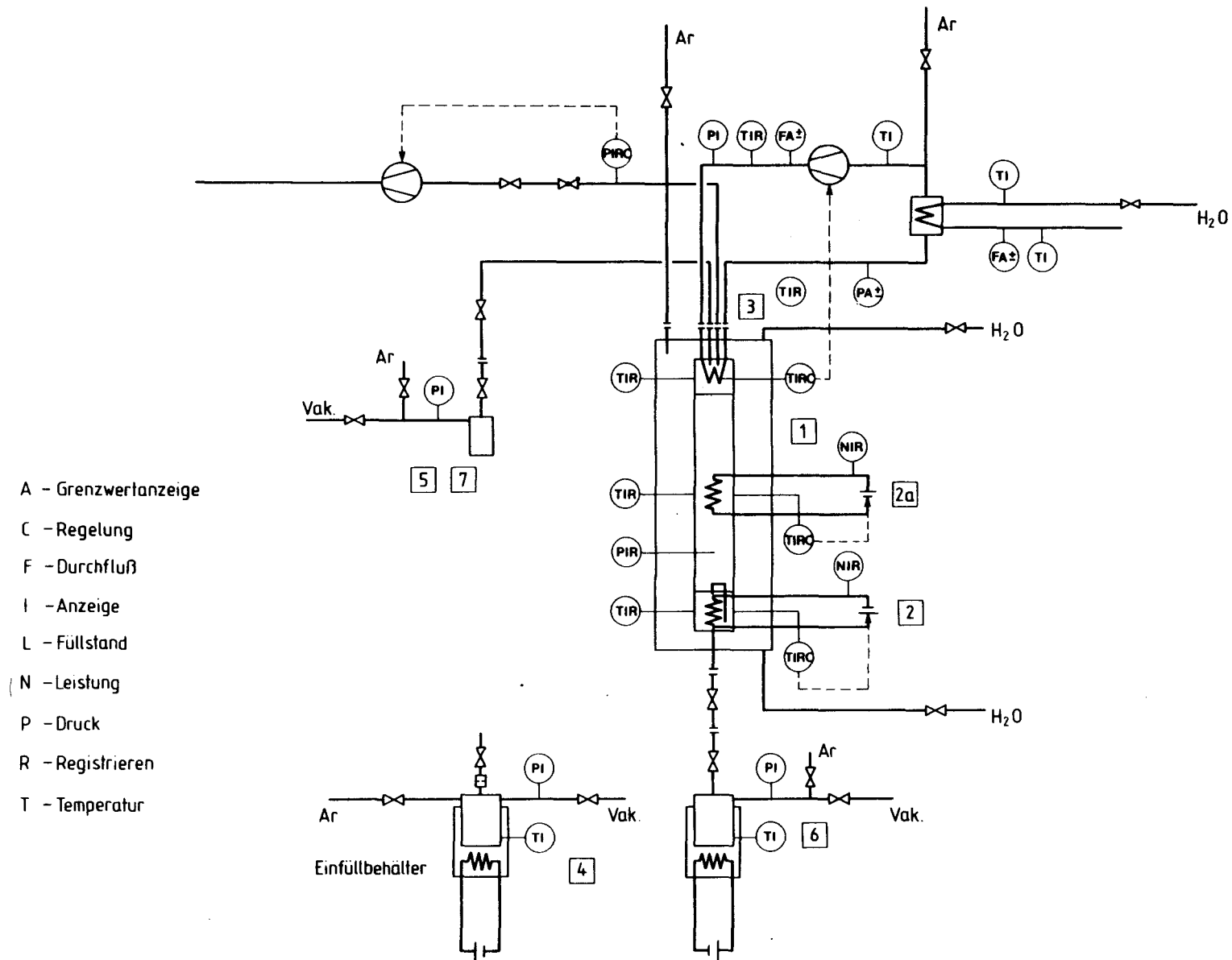


Abb. 2.2: Fließbildentwurf für die diskontinuierlich arbeitende Destillationsanlage

Bei der diskontinuierlichen Destillation erfolgt die Destillatentnahme nach Beendigung des Destillationsvorganges durch die Probennahmevorrichtung. Das Sumpfprodukt wird zum Entleeren der Kolonne in einen Behälter abgesaugt [6].

Die Probennahme erfolgt bei der kontinuierlichen Destillation durch die Umleitung des Destillats über einen Probenbehälter, der von der Destillatleitung abgeflanscht werden kann [7].

Zur Analyse des Kopfproduktes der diskontinuierlich arbeitenden Kolonne werden entsprechende Proben durch Absaugen über eine Kapillare in den abflanschbaren Probenbehälter geleitet [7].

2.3 Kostenvergleich zwischen kontinuierlich und diskontinuierlich arbeitender Anlage

Von H.J. CORDEWINER et al. wurde im Rahmen einer Projektstudie /7/ für die kontinuierlich arbeitende Hochtemperaturdestillationsanlage eine Kostenkalkulation durchgeführt, die auf dem oben gezeigten Fließbild basiert.

Tabelle 2.1 zeigt die nach /7/ ermittelten Herstellungskosten für die kontinuierlich arbeitende Anlage und als Vergleich die Kosten, mit denen für die diskontinuierlich arbeitende Anlage zu rechnen ist. Danach betragen die Kosten für die diskontinuierlich betriebene Anlage etwa nur die Hälfte der Kosten der kontinuierlich arbeitenden Anlage.

Bei der Bewertung der in Tab. 2.1 aufgeführten Kosten muß in jedem Falle den folgenden Randbedingungen Rechnung getragen werden.

Da es sich bei diesen Konzepten um in dieser Form noch nicht existierende Anlagen handelt, die in einigen Bereichen in Bezug auf thermische Beanspruchung und Korrosion die Grenze des technisch Machbaren erreichen, ist damit zu rechnen, daß über die hier aufgeführten Kosten hinaus noch erhebliche Mittel für

begleitende Entwicklungs- und Erprobungsarbeiten bereitgestellt werden müssen. Außerdem sind keine Kostensätze enthalten für

- bauliche Maßnahmen
- Brandschutzeinrichtungen
- Anlagenmodifikationen aufgrund genehmigungsbehördlicher Auflagen
- Prüfung und Abnahme von Anlagenkomponenten und Werkstoffen,

	Anlagenbetrieb	
	kontinuierlich /7/	diskontinuier- lich
Feedtiegel	101	55
Sumpftiegel	101	55
Kolonne	294	220
Destillatentnahme	51	13
Li-führende Leitungen	91	22
Ar-Kühlkreislauf	91	91
Ar-Versorgung Komponenten	23	23
Ar-Versorgung Sicherheitseinrichtungen	18	18
Vakuumanlage	35	35
Aufnahmegestüt	41	10
Meß-, Regel-, Steuereinrichtungen	255	85
	<hr/> 1123	<hr/> 638

Tab. 2.1: Kostenvergleich zwischen den beiden Anlagenvarianten
(in TDM).

Im folgenden wird nur noch das Konzept der diskontinuierlich arbeitenden Anlage weiter behandelt. Die kontinuierlich arbeitende Variante wurde aus Kostengründen aufgegeben.

3. AUSLEGUNGSDATEN FÜR DIE DISKONTINUIERLICH ARBEITENDE KOLONNE

3.1 Festgelegte Größen, vereinfachende Annahmen

Anfangs- und Endprodukt, Anreicherung:

Vorgegeben wird als Feedprodukt ein Lithium-Deuterium-Gemisch mit einer Konzentration von 10 ppm Lithiumdeuterid; $x_f = 10^{-5}$.

Lithiumdeuterid soll im Lithium um den Faktor 10 auf 100 ppm angereichert werden; $x_d = 10^{-4}$.

Im Sumpfprodukt soll Lithiumdeuterid auf 1 ppm abgereichert werden; $x_w = 10^{-6}$.

Dampfmassenstrom:

Die zeitlich verdampfbare Masse V_m des Feed- bzw. Sumpfproduktes hängt von der spezifischen Leistung der Sumpfheizung sowie von der spezifischen Leistung des Kondensators ab (siehe hierzu Kapitel 4.2). Sie ist eine entscheidende Größe für die Dimensionierung der Kolonne. Es wird festgelegt

$$V_m = 600 \text{ g/h.}$$

Anteile des Lithium-Deuterid-Systems:

Zur Vereinfachung der Auslegungsrechnung wird angenommen, daß die flüssige bzw. gasförmige Phase des Li-D-Systems in folgender Form vorliegt /8/:

flüssige Phase: Li

gasförmige Phase: Li, Li₂D.

3.2 Anreicherungsfaktor, Destillationsdruck, Destillations- temperatur

Der Anreicherungsfaktor R ist definiert als

$$R = \frac{p_{*1}}{p_{*2}} = \frac{x_{Dg}}{x_{Dl}} . \quad (3.1)$$

Mit dem Raoultischen Gesetz

$$p_{*1} = \frac{p_1}{x_1} \quad (3.2)$$

erhält man

$$R = \frac{p_1}{x_1 p_{*2}} \quad (3.3)$$

$$R = \frac{x_2 p_{*2}}{p_2} .$$

Hierbei bedeuten:

- p_* - Dampfdruck der einzelnen Komponenten
- p - Partialdruck der einzelnen Komponenten
- x_{Dg} - Molenbruch des Deuteriums in der gasförmigen Phase
- x_{Dl} - Molenbruch des Deuteriums in der flüssigen Phase

Für eine destillative Anreicherung des Deuteriums im Lithium muß der Anreicherungsfaktor R größer 1 sein.

Bei einer festgelegten Destillationstemperatur von

$$T = 1323 \text{ K},$$

erhält man mit

$$x_{Li_2D} = 10^{-5}$$

$$p_{*Li} = 68 \text{ Torr /9/}$$

$$\ln p_{Li_2D} = 13,5 \text{ atm /10/}$$

einen Anreicherungsfaktor

$$R = 1,564.$$

3.3 Kolonnendurchmesser

Der Kolonnendurchmesser D errechnet sich über die Flutgeschwindigkeit u_t der Kolonne aus der zeitlich anfallenden Dampfmenge V .

$$D = \left(\frac{4 V}{u_t \cdot \pi} \right)^{1/2} \quad (3.4)$$

Die Flutgeschwindigkeit u_t hängt von einer Vielzahl von Parametern ab. Für ihre Abschätzung haben SHERWOOD et al. /11/ zahlreiche Versuche ausgewertet und die Beziehung

$$\frac{u_t^2}{g \epsilon^3} \cdot \frac{a_p}{\rho_L} \cdot \mu_L^{0,2} = F \left(\frac{L}{G} \cdot \sqrt{\frac{\rho_G}{\rho_L}} \right) \quad (3.5)$$

graphisch dargestellt.

Hierbei sind:

- u_t - Flutgeschwindigkeit, bezogen auf den leeren Kolonnenquerschnitt, sq.ft./cu.ft.
- a_p - Spezifische Oberfläche der Füllkörper, sq.ft./cu.ft.
- ϵ - Lückenvolumen der trockenen Füllkörper
- g - Erdbeschleunigung, (32,2 ft./sec.²)
- ρ_G - Dampfdichte, lb./cu.ft.
- ρ_L - Flüssigkeitsdichte, lb./cu.ft.
- L - Rücklaufmasse, lb./sec.sq.ft.
- G - Dampfmasse, lb./sec.sq.ft.
- μ_L - Viskosität des Rücklaufs, cp.

Mit den folgenden Werten

$$\begin{aligned} a_p &= 1543,0 & \text{m}^2/\text{m}^3 & \text{(4 mm Vollwendeln /12/)} \\ \epsilon &= 0,76 & & \text{(4 mm Vollwendeln /12/)} \\ \rho_G &= 5,72 \cdot 10^{-3} & \text{g/cm}^3 & \text{(Li /13/)} \\ \rho_L &= 0,43 & \text{g/cm}^3 & \text{(Li /13/)} \\ L &= 600,0 & \text{g/h} & \text{(festgelegt)} \\ G &= 600,0 & \text{g/h} & \text{(festgelegt)} \\ \mu_L &= 0,16 & \text{cp} & \text{(Li /13/)} \end{aligned}$$

erhält man eine Flutgeschwindigkeit

$$u_t = 10,89 \text{ m/s.}$$

Setzt man diesen Wert in Gleichung (3.4) ein und berücksichtigt mit dem Faktor 0,6, daß eine Kolonne i. a. bei 50 % bis 70 % ihrer Grenzgeschwindigkeit gefahren wird /12/, so erhält man für den Kolonnendurchmesser $D = 80,5 \text{ mm}$.

Aus Gründen der erforderlichen Oberfläche des Sumpfproduktbehälters, der Kondensatoroberflächen sowie aus fertigungstechnischen Gründen (siehe hierzu Kapitel 5 bzw. 6.2) wird der Kolonnendurchmesser auf

$$D = 100 \text{ mm}$$

festgelegt.

3.4 McCabe-Thiele-Diagramm

Die für die Bestimmung der theoretischen Stufenzahl einer Destillationskolonne oft verwendete Methode von McCabe-Thiele versagt bei Systemen mit sehr geringer oder sehr hoher Produktkonzentration. P.J. HORVATH, und R.S. SCHUBERT /14/ geben für diese Fälle eine Alternativmethode an, indem sie die Darstellung des McCabe-Thiele-Diagramms mit logarithmischen Koordinaten vorschlagen /14/.

SCHULZE und STAGE /12/ sowie THORMANN /12/ haben in Versuchen mit einer Testkolonne von 24 mm Durchmesser und 600 mm Schichthöhe eine theoretische Trennstufenhöhe für die 4 mm Wendel von 20 mm bis 50 mm ermittelt.

Da sich die Trennstufenhöhe i. a. mit wachsendem Kolonnendurchmesser /15/, mit größer werdender Schichthöhe (Maldistribution) sowie mit fallendem Destillationsdruck /15/ erhöht, wurde für die Auslegung der Kolonne zur Hochtemperaturdestillation eine HETP von etwa 80 mm angenommen. Mit diesem Wert ergibt sich dann eine Schichthöhe der Kolonne von

$$H \approx 900 \text{ mm.}$$

4. THERMODYNAMISCHE AUSLEGUNGSBERECHNUNGEN

4.1 Vorbemerkungen

Ein wichtiger Parameter für den Anreicherungsprozeß ist der bereits erwähnte Massenstrom des zu verdampfenden und wieder zu kondensierenden Lithiumgemisches. Die Größe des Massenstromes beeinflusst die Geometrie von Verdampfer und Kondensator der Destillationsanlage. Den Aufbau der Anlage zeigt Abb. 4.1.

In den folgenden Abschnitten werden die thermodynamischen Berechnungen der Anlagenkomponenten durchgeführt. Die zur Berechnung benötigten thermodynamischen Stoffwerte des Lithiums wurden /1/, /9/, /13/, /16/ und /17/ entnommen.

4.2 Kondensator

Der Kondensator bestimmt mit seinen Abmessungen den Aufbau der Destillationsanlage, er soll deshalb als erste Komponente der Anlage behandelt werden.

Ausgegangen wird von einem Lithium-Massenstrom des Kondensates von

$$\dot{m}_K = 600 \text{ g/h} = 0,17 \text{ g/s.}$$

Die zur Verdampfung des Lithiums aufgewendete Leistung \dot{Q}_K muß im Kondensator wieder abgeführt werden:

$$\dot{Q}_K = \dot{m}_K \cdot r = 3860 \text{ W.}$$

Die Verdampfungswärme $r = 22705 \text{ J/g}$ wurde /9/ und /17/ entnommen.

Die zusätzlich abzuführende Leistung zur Abkühlung des Kondensates auf niedrigere Temperaturen, die durch den Werkstoff der Kondensatorrohre bedingt sind, kann hier vernachlässigt werden.

Der Wärmeübergangskoeffizient für die Kondensationsoberfläche läßt sich nach /18/, /19/ und /20/ nach folgender Gleichung ermitteln:

$$\alpha_K = \frac{4}{3} \left(\frac{r \cdot \rho^2 \cdot g \cdot \lambda^3}{4\eta \cdot H (\vartheta_s - \vartheta_w)} \right)^{1/4} = 20,8 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2 \text{K}}.$$

Dabei wurden folgende Werte verwendet:

(Stofftemperatur ca. $1000^\circ - 1050^\circ \text{C}$)

r	$=$	22705	Ws/g
ρ	$=$	0,434	g/cm^3
g	$=$	981	cm/s^2
λ	$=$	0,59	$\text{W/cm} \cdot \text{K}$
η	$=$	$0,18 \cdot 10^{-2}$	$\text{g/cm} \cdot \text{s}$
H	$=$	20	cm (Höhe der Kondensationsfläche)
$(\vartheta_s - \vartheta_w)$	$=$	100	$^\circ \text{C}$ (Differenz zwischen Siede- und Wandtemperatur)

Die erforderliche Kondensationsoberfläche wird somit gefunden zu

$$A_K = \frac{\dot{Q}_K}{\alpha_K (\vartheta_s - \vartheta_w)} = 2 \text{ cm}^2.$$

Die Wärmeabfuhr vom Kondensator sollte mittels eines Gaskreislaufs erfolgen. Für das vorgegebene Arbeitsmedium Argon und die abzuführende Wärmeleistung bestand das Problem, die gasseitig benötigte Wärmeübertragungsfläche möglichst klein zu halten. Aus einer Vielzahl von Berechnungen wurden folgende Parameter für den Argon-Kreislauf ausgewählt:

Mittlerer Systemdruck	$p =$	1 bar
Eintrittstemp. in den Kondensator	$\vartheta_E =$	50 °C
Austrittstemp. aus dem Kondensator	$\vartheta_A =$	200 °C

Der gasseitige Strömungsquerschnitt wird durch 6 parallele Kondensatorrohre mit jeweils 10 mm Innendurchmesser gebildet. Die zur Berechnung benötigten thermodynamischen Stoffwerte des Argons wurden aus /21/ entnommen.

Für die Mitteltemperatur von 125°C sind:

$$\begin{aligned}\rho &= 1,217 \quad \text{kg/m}^3 \\ \eta &= 2,87 \cdot 10^{-5} \quad \text{kg/s} \cdot \text{m} \\ \lambda &= 2,23 \cdot 10^{-2} \quad \text{W/m} \cdot \text{K} \\ c_p &= 0,52 \quad \text{kJ/kg} \cdot \text{K} \quad (\text{konstant})\end{aligned}$$

Aus den oben genannten Werten resultiert ein Argonmassenstrom von

$$\dot{m}_G = \frac{\dot{Q}_K}{c_p \cdot (\vartheta_A - \vartheta_E)} = 4,95 \cdot 10^{-2} \quad \text{kg/s.}$$

Weiter sind:

Volumenstrom

$$\dot{V} = \frac{\dot{m}}{\rho} = 4,07 \cdot 10^{-2} \frac{\text{m}^3}{\text{s}} = 146,4 \frac{\text{m}^3}{\text{h}} \quad (1 \text{ bar}; 125^\circ\text{C})$$

Strömungsgeschwindigkeit im Kondensatorrohr

$$w = \frac{\dot{V}}{A_{\text{ges}}} = 86,4 \quad \text{m/s}$$

Reynolds-Zahl

$$Re = \frac{w \cdot d_h \cdot \rho}{\eta} = 3,66 \cdot 10^4$$

Prandtl-Zahl

$$Pr = \frac{\eta \cdot c_p}{\lambda} = 0,67$$

Die den Wärmeübergang beschreibende Nu-Zahl wurde nach /18/ ermittelt:

$$Nu = 0,037 (Re^{0,75} - 180) \cdot Pr^{0,42} \left[1 + \left(\frac{d}{L} \right)^{2/3} \right] \cdot \left(\frac{\eta_F}{\eta_W} \right)^{0,14} = 74,0.$$

Der Wärmeübergangskoeffizient für die gasseitige Oberfläche beträgt somit

$$\alpha_i = \frac{Nu \cdot \lambda}{d} = 1,65 \cdot 10^{-2} \text{ W/cm}^2\text{K}.$$

Wegen der in Kapitel 5.2 aufgeführten Korrosionsproblematik darf die Wandtemperatur der druckbelasteten Kondensatorrohre nicht zu hoch gewählt werden. Für eine Temperaturdifferenz $\Delta\vartheta_{W,F} = 200^\circ\text{C}$ zwischen Kondensatorrohrwand und Gas ergibt sich die gasseitige Wärmeübertragungsfläche zu

$$A_O = \frac{\dot{Q}_K}{\alpha_i \cdot \Delta\vartheta_{W,F}} \approx 1200 \text{ cm}^2.$$

Diese Oberfläche wird durch die in Abb. 4.1 gezeigte Rohranordnung des Kondensators verwirklicht.

Anzumerken ist, daß eine Erhöhung des zu kondensierenden Lithium-Massenstromes, z. B. verursacht durch eine Leistungsexkursion der Verdampferheizung, vermieden werden muß, da ein solcher Betriebszustand zwangsläufig zu erhöhten Temperaturen der Kondensatorrohre führt.

Die nach /22/ und /23/ ausgeführte Druckverlustberechnung, die hier nicht im einzelnen aufgeführt werden soll, führt zwischen Argoneintritt und Argonaustritt (vgl. Abb. 4.1) zu einem Druckverlust von

$$\Delta p = 0,32 \text{ bar.}$$

4.3 Sumpfheizung

Die Sumpfheizung umgibt den Sumpfproduktbehälter. Der ungünstigste Fall, der zu den höchsten Temperaturen der Sumpfheizung führt, liegt vor, wenn in der Destillationskolonne Vakuum herrscht. Die gesamte Verdampferleistung wird dann mittels Wärmestrahlung übertragen. Die folgende Gleichung beschreibt den Wärmeübergang zweier sich konzentrisch umschließender Körper:

$$\dot{Q}_K = \frac{C_s}{\frac{1}{\epsilon_i} + \frac{A_i}{A_a} \left(\frac{1}{\epsilon_a} - 1 \right)} \cdot A_i \cdot \left[\left(\frac{T_a}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_i}{100} \right)^4 \right]$$

darin bedeuten:

Index i $\hat{=}$ Sumpfproduktbehälter

Index a $\hat{=}$ Sumpfheizung

$C_s =$	$5,78 \cdot 10^{-4} \text{ W/cm}^2 \text{K}^4$	(Strahlungs-Konstante)
$\epsilon_i =$	$\epsilon_a \approx 1,0$	(Emissionskoeffizienten)
$A_i =$	518 cm^2	(Oberfläche Sumpfproduktbehälter)
$T_i =$	$1050^\circ + 273^\circ = 1320 \text{ K}$	(Temperatur Sumpfbehälter)
$\dot{Q}_K =$	$3,860 \text{ kW} \approx 4 \text{ kW}$	(vgl. 4.2)

Die gesuchte Temperatur der Sumpfheizung läßt sich aus oben genannter Gleichung bestimmen:

$$T_a = 1446 \text{ K} \quad (\hat{=} 1173^\circ \text{C}).$$

4.4 Ermittlung der Wärmeverluste

4.4.1 Wärmeverluste im Bereich der Stützheizung

Den Aufbau der thermischen Isolation zeigt Abb. 4.2.

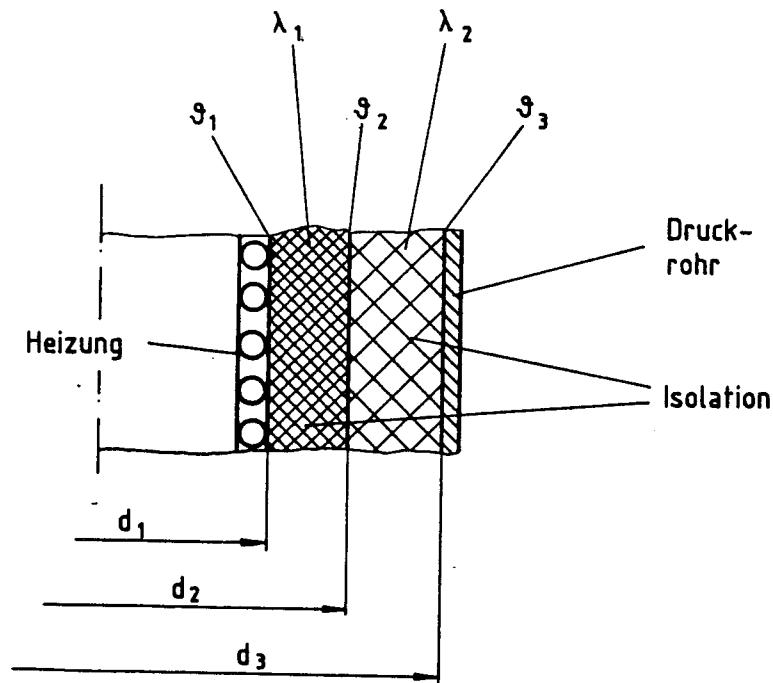


Abb. 4.2: Aufbau der thermischen Isolation

Es sind hierbei:

θ_1	=	1050	°C	
θ_3	=	50	°C	
d_1	=	Ø 19	cm	
d_2	=	Ø 30	cm	
d_3	=	Ø 46	cm	
λ_1	=	$0,18 \cdot 10^{-2}$	W/cmK	(bei ca. 900°C; Firmenangabe)
λ_2	=	$5,25 \cdot 10^{-4}$	W/cmK	(bei ca. 450°C; Faserisolierung).

Die Wärmeleitfähigkeit λ_2 der Faserisolierung beträgt aufgrund von Erfahrungswerten /24/ etwa das 1,5-fache der Wärmeleitfähigkeit des reinen Gases. Die Wärmeleitfähigkeit des Gases ist im Bereich von 0,1 - 10 bar nahezu druckunabhängig /19/.

Die Wärmeverluste, bezogen auf die Länge der Anlage, betragen im Bereich der Stützheizung

$$\left(\frac{\dot{Q}}{l}\right)_{St} = \frac{2\pi \cdot (\vartheta_1 - \vartheta_3)}{\frac{\ln(d_2/d_1)}{\lambda_1} + \frac{\ln(d_3/d_2)}{\lambda_2}} = 5,88 \text{ W/cm}.$$

4.4.2-----Wärmeverluste im Bereich der Sumpfheizung

Es ist der gleiche Aufbau von Isolation und Rechenformalismus gegeben, wie unter 4.4.1 gezeigt, jedoch mit folgenden Werten:

ϑ_1	=	1173	°C	
ϑ_3	=	50	°C	
d_1	=	Ø 21	cm	
d_2	=	Ø 30	cm	
d_3	=	Ø 46	cm	
λ_1	=	$0,25 \cdot 10^{-2}$	W/cmK	(bei ca. 1000°C; Kaoblock-Formteile)
λ_2	=	$5,5 \cdot 10^{-4}$	W/cmK	(bei ca. 520°C; Faserisolierung)

Die Wärmeverluste im Bereich der Sumpfheizung belaufen sich auf

$$\left(\frac{\dot{Q}}{l}\right)_s = 7,67 \frac{\text{W}}{\text{cm}}.$$

Diese Leistung muß zusätzlich zu der unter 4.3 genannten Verdampfungsleistung von 3860 W von der Sumpfheizung aufgebracht werden.

4.5 Kühlung des Druckbehälterrohres

Zur Vermeidung unzulässiger Aufheizung des Labors sollte die Verlustwärme durch auf das Druckbehälterrohr aufgeschweißte Kühlschlangen abgeführt werden.

Die maximale Wärmestromdichte fällt im Bereich der Sumpfheizung an:

$$\dot{q}_s = \left(\frac{\dot{Q}}{I}\right)_s \cdot \frac{1}{\pi \cdot d_a} = 0,052 \text{ W/cm}^2$$

$$\text{mit } d_a = 47 \text{ cm.}$$

Der Abstand a zweier benachbarter Kühlschlangen für eine vorgegebene Temperaturdifferenz auf der zu kühlenden Oberfläche läßt sich näherungsweise mit folgender Beziehung ermitteln:

$$a = \sqrt{\frac{(\vartheta_{\max} - \vartheta_{\min}) \cdot 8 \cdot \lambda \cdot s}{\dot{q}_v}} = 18,6 \text{ cm.}$$

Dabei sind:

λ	=	0,15 W/cmK	(für Edelstahldruckrohr)
s	=	0,5 cm	(Wanddicke-Druckrohr)
$(\vartheta_{\max} - \vartheta_{\min})$	=	30 °C	(Temperaturdifferenz auf dem Druckrohr)

Gewählt wurde ein Abstand von $a = 10 \text{ cm}$ in der Konstruktion.

5. WERKSTOFFPROBLEMATIK

5.1 Lithiumeigenschaften

Lithium ist ein silberweißes Metall, das, wie die übrigen Alkalimetalle, bereits an Luft oxidiert und mit Wasser sehr heftig reagiert. Auch mit Stickstoff setzt sich Lithium, wenn auch langsam, schon bei Raumtemperatur zu Lithiumnitrid (Li_3N) um. Es muß deshalb insbesondere vor feuchter Umgebung geschützt werden. Übliche Maßnahmen, dies zu erreichen, sind neben Vakuum, Ölabdeckung, Helium- bzw. Argonatmosphäre.

5.2 Korrosionsverhalten

Infolge der starken Reaktionsfähigkeit von Lithium kann das reine Metall leicht mit seinem Nitrid, Hydrid, Oxid oder Hydroxid verunreinigt werden. Diese Verbindungen sind bei höheren Temperaturen noch weitaus aggressiver als das Lithium selbst. Die korrodierende Wirkung ist somit stark vom Reinheitsgrad abhängig. Wurde beispielsweise vor dem Schmelzen keine einwandfreie Entölung vorgenommen, so entsteht aggressives Lithiumcarbid. Das Absondern der Verunreinigungen durch Filter ist hierbei nicht unproblematisch, da in bestimmten Temperaturbereichen ein selektiver Angriff auf einzelne Legierungselemente erfolgt.

An einigen Beispielen soll die korrodierende Wirkung verunreinigter Lithiumschmelzen aufgezeigt werden:

Nickel, ein wesentliches Legierungselement austenitischer RSH-Stähle, wird ab 300°C zunehmend durch Lithium angegriffen. Ferritische Chrom- und Chromnickelstähle sind zwar korrosionsbeständiger, weisen jedoch bei diesen Temperaturen metallurgische Probleme auf, beispielsweise die Bildung werkstoffversprödender intermetallischer Phasen.

Da Carbide sehr stark angegriffen werden, sind im Regelfall kohlenstoffarme Stähle zu bevorzugen. Allerdings kann es auch hier, insbesondere bei nichtstabilisierten Qualitäten, zu einer Zerstörung vornehmlich der Korngrenzcarbide kommen.

Global kann gesagt werden, daß die ablaufenden werkstoffkundlichen Vorgänge sehr komplex und noch keineswegs hinreichend erforscht und bekannt sind. Es hat sich jedoch insgesamt gezeigt, daß die korrodierende Wirkung des Lithiums stark vom Reinheitsgrad abhängt, wobei hier außerdem die Art der Verunreinigung eine wichtige Rolle spielt. Mit zunehmender Temperatur wird die Aggressivität im Regelfall erhöht, wobei die ablaufenden metallographischen Vorgänge selbst auch temperaturabhängig sind. Bei unterschiedlichen Werkstoffen und Temperaturen in einer Anlage ist ein Massentransport - beispielsweise aufgrund temperaturabhängiger Löslichkeit der betreffenden Komponente - möglich. Auch der Strömungszustand des flüssigen Lithiums ist wichtig; so kann bei höheren Geschwindigkeiten Erosions-Korrosion auftreten.

Die extreme Belastung verschiedener Anlagenkomponenten soll am Beispiel des Kondensators verdeutlicht werden:

Temperatur des Li-Dampfes:	1050°C
Arbeitsdruck der Destillationskolonne:	ca. 0,1 bar
Temperatur der Kondensatorrohre:	max. 400°C
Mittlerer Kühlgasdruck (Argon):	1 bar

Geht man davon aus, daß Anlagen mit den hier vorliegenden Parametern bisher nicht betrieben werden und bezieht die bereits beschriebene Korrosionsproblematik in die Betrachtungen mit ein, so ergibt sich hieraus zwingend die Notwendigkeit, Vorversuche zur Werkstoff- und Komponentenerprobung durchzuführen.

Um das Verhalten vorausgewählter Werkstoffe zu studieren, sollten Probenkapseln, gefertigt aus den zu untersuchenden Materialien, mit Lithium gefüllt und im Vakuum mittels Elektronenstrahlschweißung abgeschlossen werden. Die Probenkörper könnten dann nach einem vorgegebenen Zeit-Temperatur-Programm geglüht,

anschließend aufgetrennt und metallographisch untersucht werden.

Für die Erprobung spezieller Komponenten wie Verschraubungen, Dichtungen etc. kann flüssiges Lithium durch Argondruck zwischen zwei beheizten Tiegeln zyklisch hin- und zurückgepumpt werden. In die verbindende Rohrleitung können dann die zu untersuchenden Komponenten eingebaut werden. Außerdem lassen sich hierbei wertvolle Erkenntnisse zur Handhabung von Lithium, zur Tiegelbeheizung, Rohrdimensionierung und -isolierung und anderes mehr gewinnen.

6. KONSTRUKTIVER AUFBAU

Abb. 4.1 vermittelt einen Überblick über die Kolonnenkonstruktion. Da die Destillationskolonne bei einer Temperatur von 1050°C und einem Druck von ca. 0,1 bar betrieben wird, ist ein zweischaliger Aufbau zur Druckentlastung erforderlich. Die Kolonne selbst kann aufgeteilt werden in Verdampferbereich (Sumpfproduktbehälter), Füllkörpersäule und Kondensatorbereich. $\text{Li/Li}_x\text{D}_y$ Gemisch wird verdampft und gelangt in den Bereich der Füllkörpersäule. Hier finden Austausch und Anreicherung in Wechselwirkung mit dem rückströmenden Kondensat auf der Basis unterschiedlicher temperaturabhängiger Dampfdrücke für Lithium und Lithiumdeuterid statt. Die erforderliche große Reaktionsoberfläche wird durch die Füllkörper erreicht. Das oberhalb der Kolonne entstehende Kondensat läuft an den Rohrwandungen des Kondensators ab, sammelt sich am jeweils tiefsten Punkt des Rohrbogens, tropft in den Sammelkegel und füllt diesen bis zu den Überlaufbohrungen. Von hier gelangt das angereicherte Lithiumgemisch in den Verteiler, der eine möglichst gleichmäßige Beaufschlagung der Kolonneneinbauten garantiert. Die Probennahme erfolgt durch Absaugen aus dem Sammelkegel.

Die Anlage ist konstruktiv so ausgebildet, daß die Kolonne als Gesamtheit demontierbar ist. Deshalb mußten alle Versorgungsanschlüsse (Sumpffentleerungsleitung, Thermoelemente etc.) durch den oberen Flansch nach außen geführt werden.

Die Sumpfheizung besteht aus einem Graphitheizleiter, der den Sumpf der Kolonne als Wendel umgibt. Die Anschlußenden sind wassergekühlt, die Isolierung gegenüber dem Druckbehälter erfolgt mittels Vespel (Polyimid), der Kontaktschutz zu benachbarten Bauelementen wird durch Keramikhülsen gewährleistet, die belastungsfrei angeordnet sind.

Damit über die Säulenhöhe eine möglichst konstante Prozeßtemperatur eingestellt werden kann, ist die Kolonne zur Kompensation der Wärmeverluste von einer Stützheizung umgeben, die in einzelnen Modulen aufgebaut ist. Jeder Modul besteht aus zwei vakuumgeformten Halbschalen (keramische Fasern) mit eingebetteten Heizelementen. Zur Verbesserung der Montagemöglichkeiten insbesondere der Heizmodule wurde der Druckbehälter teilbar ausgeführt. Die Koaxialität der Stützheizung wird durch einstellbare Abstandshalter garantiert.

Für den Kondensator bestand die Problematik, die gasseitig notwendige Wärmeübertragungsfläche von 1200 cm^2 (siehe Kapitel 4.) unter den vorgegebenen räumlichen Restriktionen konstruktiv zu realisieren. Erschwerend kam hinzu, daß Durchführungen für Vakuum, Thermoelemente und Li-Abzug geschaffen werden mußten. Aus mehreren Entwürfen zur Rohrführung und Ausbildung der Gasverteilungs- bzw. Sammelkammern wurde die aus fertigungstechnischer Sicht beste Lösung ausgewählt.

Es besteht die Möglichkeit, daß die Temperatur der Kondensatorrohre aufgrund eines gegenüber dem Auslegungspunkt erhöhten Lithium-Dampfangebotes in unzulässiger Weise ansteigt. Somit muß die Leistung der Verdampferheizung geregelt bzw. begrenzt werden. Zur Überwachung der Rohrwandtemperatur wird ein Thermoelement in ein Kondensatorrohr eingeführt und zur Gewährleistung eines sicheren Werkstoffkontaktes in die Wandung eingearbeitet. Dies ist notwendig, da die Gastemperatur um ca. 200°C unterhalb der Rohrwandtemperatur liegt.

LITERATUR

- /1/ V.A. Maroni, E.J. Cairns
and F.A. Cafasso
A Review of the Chemical, Physical, and Thermal Properties
of Lithium that are Related to its Use in Fusion Reactors
Bericht ANL-8001, 1973
Argonne National Laboratory, Argonne, Illinois 60439, USA

- /2/ H. Herold, H. Tasso
Ullmanns Encyclopadie der technischen Chemie
Band 14, 1977
Verlag Chemie GmbH, Weinheim

- /3/ W. Häfele et al.
Fusion and Fast Breeder Reactors
Bericht RR-77-8, 1977
International Institute for Applied Systems Analysis
Laxenburg, Österreich

- /4/ H. Brücher, K. Hartmann
Freisetzung von gasförmigem Tritium aus Wiederaufarbeitungs-
anlagen
Bericht Jül-1838, 1983

- /5/ J. Eidens, G.H. Wolf
Zur Technologie eines Fusionsreaktors
Atomwirtschaft, Atomtechnik
Jahrgang XXVII, Nr. 3 (März 82)

- /6/ G.M. McCracken et al.
Extraktion of Tritium from Liquid Lithium
Nucl. Fusion Spec. Suppl. 1974
Page 439 - 448

- /7/ H.J. Cordewiner et al.
Rektifikationsanlage zur Anreicherung von Deuterium in
Lithium
Projektstudie, 1982

- /8/ E. Barnert
Auslegungsdaten, Kondensatverteiler und Kondensator für
eine Destillationskolonne zur Anreicherung von Tritium
in metallischem Lithium
Bericht Jül-1885, 1984

- /9/ Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie
Band Lithium, 8. Auflage

- /10/ H.R. Ihle, C.H. Wu
The Solubility of Deuterium in, and its Separation from,
Liquid Lithium by Distillation.
Second International Congress on Hydrogen in Metals
Paris, France, 1977

- /11/ R.H. Perry, C.H. Chilton
Chemical Engineer's Handbook
Mc Graw-Hill, Fifth Edition

- /12/ E. Krell
Handbuch der Laboratoriumsdestillation
Dr. Alfred Hüthing Verlag, 1976

- /13/ J.O. Cowels, A.D. Pasternak
Lithium Properties Related to Use as a Nuclear Reactor
Coolant
Bericht UCRL-50647
Lawrence Radiation Laboratory, University of California
Livermore

- /14/ P.J. Horvath, R.F. Schubert
Find Distillation Stages Graphically
Chemical Engineering
Vol. 65, 1958

- /15/ R. Billet
Industrielle Destillation
Verlag Chemie, 1973

- /16/ D.W. Jeppson, J.L. Ballif, W.W. Juan and B.E. Chou
Lithium Literature Review: Lithium Properties and
Interactions
Hanford Engeneering Development Laboratory
HEDL-TME 78-15, UC-20; March 1978
- /17/ R.J. Bauer
Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie
Bd. 16, Lithium und Lithiumverbindungen
Sonderdruck Verlag Chemie GmbH, D-6940 Weinheim, 1980
- /18/ F. Stelzer
Wärmeübertragung und Strömung
Verlag K. Thiemig KG, München
- /19/ VDI-Wärmeatlas
VDI-Verlag Düsseldorf, 1977
- /20/ Gröber, Erk, Grigull
Wärmeübertragung
Springer-Verlag
- /21/ J. Hilsenrath et al.
Tables of Thermodynamic and Transport properties of Air,
Argon, Carbon Dioxide, Carbon Monoxide, Hydrogen, Nitrogen,
Oxygen and Steam
Pergamon Press, 1960
- /22/ Hütte, Bd. 1, 29. Auflage
Verlag W. Ernst und Sohn
- /23/ B. Eck
Technische Strömungslehre, 8. Auflage
Springer Verlag
- /24/ P. Bröckerhoff
Wärmeleitfähigkeit von Faserstoffen
Bericht der Kernforschungsanlage Jülich
JÜL-992-RB, August 1973

